



TITLE:

化学反応を伴う温度成層乱流場の  
数値シミュレーション (乱流による  
輸送, 拡散, 混合の数理)

AUTHOR(S):

大西, 領; 小森, 悟; 道岡, 武信

---

CITATION:

大西, 領 ...[et al]. 化学反応を伴う温度成層乱流場の数値シミュレーション (乱流による輸送, 拡散, 混合の数理). 数理解析研究所講究録 2003, 1339: 74-82

ISSUE DATE:

2003-09

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/43427>

RIGHT:

## 化学反応を伴う温度成層乱流場の数値シミュレーション

京都大学大学院工学研究科機械工学専攻 大西 領 (Ryo Onishi), 小森 悟 (Satoru Komori) <sup>\*</sup>  
電力中央研究所 道岡武信 (Takenobu Michioka) <sup>\*\*2</sup>

<sup>\*1</sup>Department of Mechanical Engineering, Kyoto University

<sup>\*\*2</sup>Central Research Institute of Electric Power Industry

### 1 緒言

乱流場で乱流混合の影響を受けながら化学反応が進行する現象は、NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub> などの反応性汚染物質が大気中を乱流拡散する場合のような環境中の流れや、燃焼・反応器のような工業装置内の流れの中に数多く見られる。このような反応乱流場での混合反応過程の解明や反応の進行状況を数値計算により精度良く予測することは工学的に非常に重要である。

近年、スーパーコンピュータの発達によりナビエ・ストークス方程式や物質の拡散方程式を乱流モデルを用いずに直接差分法で解く直接数値計算 (DNS) が盛んに行われているが、DNS を適用できる流れ場はレイノルズ数やシュミット数の低い流れ場に限定されている。これに対し、LES (Large Eddy Simulation) はレイノルズ数やシュミット数の高い流れ場までをも計算できるため、有効な計算手法と考えられている。しかし、LES ではフィルター幅より小さなスケール (subgrid-scale: SGS) に対して適切なモデルを用いなければならないという問題点がある。SGS レイノルズ応力や SGS 乱流物質流束に関しては多くの研究者によりいろいろなモデルが提案されているが、反応乱流場で問題となるフィルターを施した反応項に対する SGS 反応モデルは数少ない。しかも既存の SGS 反応モデルは SGS での物質の混合状態を正しく評価できるとは言えず、小スケールでの物質の混合状態を考慮しなければならない適度に速い反応や液相乱流場中での反応に適用することはできない。従って、フィルターを施した反応項に対して SGS での物質の混合状態までをも考慮に入れた適切な SGS 反応モデルを考案することが望まれている。

また、LES のような応用性の高いツールは複雑な流れ場に対する適用性も求められる。そのため、流れ場を複雑なものにする代表的な要因の一つである浮力の影響を正確に評価できる LES の開発も望まれている。

そこで、本研究では SGS での物質の混合状態までをも考慮することにより、反応を伴う液相乱流場に対しても適用可能な SGS 反応モデルを開発することを第一の目的とした。さらに開発されたモデルを組み込んだ LES を温度成層乱流中の化学反応に対しても適用し、その適用性について検討することを目的とした。

### 2 Large-Eddy Simulation (LES) のための SGS 反応モデル

化学反応を伴う乱流場を支配する方程式は連続の式、Navier-Stokes 方程式および物質の拡散方程式である。これらの式にフィルタ操作を施すことにより GS 成分に対する LES での支配方程式を得ることができる。

$$\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial x_i} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \bar{U}_i}{\partial t} + \bar{U}_j \frac{\partial \bar{U}_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \bar{P}}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 \bar{U}_i}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} - \beta g_i (\bar{T} - T_s) \quad (2)$$

$$\frac{\partial \bar{\Gamma}_i}{\partial t} + \bar{U}_j \frac{\partial \bar{\Gamma}_i}{\partial x_j} = \frac{\nu}{Sc} \frac{\partial^2 \bar{\Gamma}_i}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\partial q_{ij}}{\partial x_j} + \bar{\omega} \quad (3)$$

ここで  $\bar{\phantom{x}}$  はフィルタ操作を施された量であることを表しており、 $\tau_{ij}$  および  $q_{ij}$  はフィルタ操作によって現れる SGS レイノルズ応力、SGS 乱流物質フラックスである。これらの項に対しては Smagorinsky モデルや Dynamic SGS モデルなどのモデルが提案されている。一方、次式で表されるフィルタを施した反応項に対しても SGS モデルが必要であるにも関わらず、これまで適度に速い反応や液相にも適用できる適切な SGS 反応モデルは提案されていなかった。

$$\begin{aligned} \bar{\omega} &= k_r \bar{\Gamma}_A \bar{\Gamma}_B \\ &= k_r (\bar{\Gamma}_A \bar{\Gamma}_B + \overline{\gamma'_A \Gamma_B} + \overline{\Gamma_A \gamma'_B} + \overline{\gamma'_A \gamma'_B}) \end{aligned} \quad (4)$$

## 2.1 適度に速い反応に対する SGS 反応モデル

適度に速い反応とは、化学反応の時間スケール  $\tau_c$  と乱流拡散の時間スケール  $\tau_t$  とが同程度である反応のことである。プリミティブなモデルは式 (4) の右辺第二項以降を無視してしまう。しかし、このモデルは SGS の濃度変動を無視、つまり SGS では完全混合状態にあると仮定していることになり、特に液相のように濃度場の最小スケールが小さい流れには到底適用できない。そこで、本研究では SGS での物質の混合状態を考慮するため無次元化された反応項  $\bar{\omega}$  を次のように定義した。

$$Da \bar{\Gamma}_A^* \bar{\Gamma}_B^* = Da \int_0^1 P(\Gamma_A^*) < \Gamma_A^* \Gamma_B^* | \Gamma_A^* > d\Gamma_A^* \quad (5)$$

ここで各成分の濃度は初期濃度で無次元化されており (例えば  $\Gamma_A^* = \Gamma_A / \Gamma_{A0}$ )、 $*$  は無次元化された濃度であることを表している。この式において  $P(\Gamma_A^*)$  は SGS での物質 A の濃度  $\Gamma_A^*$  の確率密度関数であり、 $< \Gamma_A^* \Gamma_B^* | \Gamma_A^* >$  は物質 A の濃度  $\Gamma_A^*$  に対する SGS での  $\Gamma_A^* \Gamma_B^*$  の条件付き期待値である。これらの二つの関数に対して適切なモデルを与えることにより、反応項  $Da \bar{\Gamma}_A^* \bar{\Gamma}_B^*$  を計算することが可能である。 $P(\Gamma_A^*)$  に対しては Girimaji<sup>[3]</sup> が提案した  $\beta$ -PDF モデルがある。

$$P(\Gamma_A^*) = \frac{\Gamma_A^{*a-1} (1 - \Gamma_A^*)^{b-1}}{B(a, b)} \quad (6)$$

ここで、

$$a = \bar{\Gamma}_A^* \left( \frac{\overline{\Gamma_A^* (1 - \Gamma_A^*)}}{\overline{\gamma_A'^2}} - 1 \right), \quad b = (a / \bar{\Gamma}_A^*) - a$$

$$B(a, b) = \int_0^1 \Gamma_A^{*a-1} (1 - \Gamma_A^*)^{b-1} d\Gamma_A^*$$

である。また、 $\overline{\gamma_A'^2}$  は無次元化された SGS での反応物質 A の濃度分散、 $B(a, b)$  はベータ関数である。

しかし、この  $\beta$ -PDF モデルは、LES では直接計算することができない SGS での  $\Gamma_A^*$  の分散  $\overline{\gamma_A'^2}$  を必要とする。そこで、LES での計算格子幅 (フィルタ幅  $\Delta$ ) より大きなフィルタ幅  $\hat{\Delta} (= 2\Delta)$  を

もつテストフィルタを施すことによりその領域内の  $\Gamma_A^*$  の分散  $\widetilde{\gamma_A^{*2}}$  を求め、次式に示すように SGS での  $\Gamma_A^*$  の分散  $\overline{\gamma_A^{*2}}$  と  $\widetilde{\gamma_A^{*2}}$  との間に一定の相関関係が存在すると仮定した。

$$\overline{\gamma_A^{*2}} \approx c_f \widetilde{\gamma_A^{*2}} \quad (7)$$

ここで、 $c_f$  は相関係数であり、Sc 数に依存すると考えられる。気相乱流場において Cook & Riley<sup>[1]</sup> はこの  $c_f$  に対して 1.0 を用いたが、液相乱流場における  $c_f$  の値は提案されていなかった。そこで、 $8\pi \times 8\pi \times 8\pi$  mm の小さな計算領域における液相定常等方性乱流場に対して DNS を実行し、液相乱流場 (Sc=600) における  $c_f$  の最適値を求めた<sup>[6]</sup>。

図 1 に SGS での濃度とテストフィルタ内での分散との結合確率密度の等高線分布を示す。図中の実線は最小二乗法によって求められた直線であり、 $c_f = 5.0$  の場合に相当する。よって、液相のような高 Sc 数流れにおいては  $c_f = 5.0$  が最適値であることがわかる。

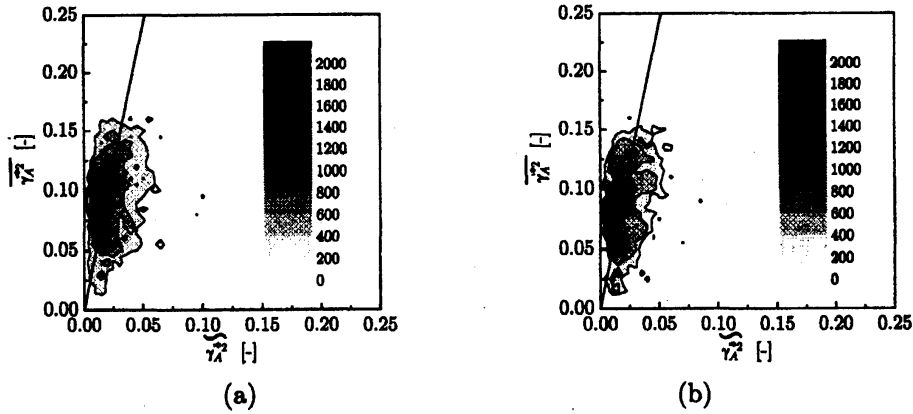


Fig. 1: Joint probability density functions of the filtered and test-filtered mean squared concentration fluctuations of species A: (a) in a non-reacting flow; (b) in a reacting flow with a moderately fast reaction.

以上により、既存のモデルを改良することによって、気相および液相乱流場の両方において適用できる  $P(\Gamma_A^*)$  に対するモデルを提案できた。反応項  $Da\overline{\Gamma_A^* \Gamma_B^*}$  を計算するためには、さらに、 $\langle \Gamma_A^* \Gamma_B^* | \Gamma_A^* \rangle$  に対する適切なモデルを考案しなければならない。

そこで、気相格子乱流場に対して DNS を行い、得られた  $\langle \Gamma_A^* \Gamma_B^* | \Gamma_A^* \rangle$  に関するデータを元に次に示すモデルを考案した<sup>[6]</sup>。

$$\langle \Gamma_A^* \Gamma_B^* | \Gamma_A^* \rangle = \alpha \left\{ -\beta \left( \Gamma_A^* - \frac{1 - \overline{\Gamma_P^*}}{2} \right)^2 + \frac{1}{4} (1 - \overline{\Gamma_P^*})^2 \right\} \quad (8)$$

$$\alpha = \alpha_1 \cdot \alpha_2 \quad (9)$$

$$\alpha_1 = \begin{cases} -(\overline{\Gamma_A^*} - 1.0)^{16} + 1.0 & (\overline{\Gamma_A^*} \leq \overline{\Gamma_B^*}) \\ -(\overline{\Gamma_B^*} - 1.0)^{16} + 1.0 & (\overline{\Gamma_B^*} \leq \overline{\Gamma_A^*}) \end{cases} \quad (10)$$

$$\alpha_2 = \frac{0.25(1.0 - \overline{\Gamma_P^*})^2 - C_\alpha \sqrt{\gamma_P^{*2}}}{0.25(1.0 - \overline{\Gamma_P^*})^2} \quad (11)$$

$$\beta = \left\{ 1 - \overline{\Gamma_P^*} \cdot \left[ \overline{\Gamma_A^*} + \frac{1 + \overline{\Gamma_P^*}}{2} \right] \right\}^2 \quad (12)$$

[ ]: ガウス記号

以上に示す式 (6) および式 (8)~(12) を用いて,  $\overline{\Gamma_A^*}$ ,  $\overline{\Gamma_B^*}$ ,  $\overline{\Gamma_P^*}$ ,  $\overline{\gamma_P'^2}$  を入力することにより, 式 (8) から  $\langle \Gamma_A^* \Gamma_B^* | \Gamma_A^* \rangle$  の値を計算することが可能となる.

以上のように, 本 SGS 反応モデルは SGS での混合状態を考慮するので気相乱流場だけでなく液相乱流場における適度に速い反応に対しても適切なモデルであると考えられる.

## 2.2 瞬間反応に対する SGS 反応モデル

瞬間反応とは, 化学反応の時間スケール  $\tau_c$  が乱流拡散の時間スケール  $\tau_t$  に比べ非常に小さい反応のことである. 瞬間反応の場合, LES での時間刻み  $\Delta t$  を  $\tau_c$  より十分小さく設定しなければならない. しかしながら, 現在のスーパーコンピュータを用いてもこのような小さな時間刻みを設定することはできないため, 物質の拡散方程式 (式 (3)) をそのまま解くことは困難である. そこで, Cook & Riley<sup>[1]</sup> が提案した保存スカラ  $Z$  を導入した. 保存スカラ  $Z$  は化学反応が起こっても不変な量であり, 二次の不可逆反応 ( $A+B \rightarrow P$ ) の場合には次式のように表せる.

$$Z = \Gamma_A - \Gamma_B \quad (13)$$

さらに,  $Z$  を正規化した変数  $\zeta$  を次式のように定義する.

$$\zeta = \frac{Z - Z_{B0}}{Z_{A0} - Z_{B0}} \quad (0 \leq \zeta \leq 1) \quad (14)$$

ここで,  $Z_{A0}$  および  $Z_{B0}$  はそれぞれ計算領域入口断面または初期条件での値であり, 反応物質 A のみが存在する所では  $Z_{A0} = \Gamma_{A0}$ , 反応物質 B のみが存在する所では  $Z_{B0} = -\Gamma_{B0}$  となる.

$\zeta$  の拡散方程式にフィルタ操作を施したものは, 式 (3) において反応項  $\overline{\omega}$  を除いた次式となる.

$$\frac{\partial \overline{\zeta}}{\partial t} + \frac{\partial \overline{U_j \zeta}}{\partial x_j} = D \frac{\partial^2 \overline{\zeta}}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\partial q_j}{\partial x_j} \quad (15)$$

SGS での  $\zeta$  の混合状態を考慮するため, SGS での確率密度関数  $P(\zeta)$  を用いた SGS モデルが Cook & Riley<sup>[1]</sup> により提案された.

$$\overline{\Gamma_i} = \int_0^1 \Gamma_i(\zeta) P(\zeta) d\zeta \quad (16)$$

$P(\zeta)$  に対しては 2.1 節と同様に, Girimaji<sup>[3]</sup> が提案した  $\beta$ -PDF モデルを適用した. ここでも LES では直接計算できない SGS での  $\zeta$  の分散  $\overline{\zeta'^2}$  を入力しなければならないので, 2.1 節と同様に, 以下のモデルを使用した.

$$\begin{aligned} \overline{\zeta'^2} &\approx c_f' \widetilde{\zeta'^2} \\ c_f' &= 1.0 \text{ (for gas turbulence)} \\ &= 5.0 \text{ (for liquid turbulence)} \end{aligned} \quad (17)$$

以上のように, 本 SGS 反応モデルは SGS での混合状態を考慮するので気相乱流場だけでなく液相乱流場における瞬間反応に対しても適切なモデルであると考えられる.

### 3 化学反応を伴う温度成層乱流場の LES

#### 3.1 中立温度成層の場合（温度成層が存在しない場合）

温度成層が存在しない液相格子乱流場に対して LES と室内実験との比較を行った<sup>[6]</sup>。主流方向断面平均流速  $U_{ave}$  を  $0.25\text{m/s}$  に設定し、テストセクション入口部に乱流格子を設置した。テストセクション入口までは上下層の流体はスプリットプレートによって完全に分離された。適度に速い反応を伴う場合の反応系には水酸化ナトリウム (NaOH : 物質 A) と酢酸メチル ( $\text{HCOOCH}_3$  : 物質 B) (ともに初期濃度  $100\text{ mol/m}^3$ ) のけん化反応



を想定した。この場合の反応速度定数は  $k_r \approx 0.02\text{ m}^3/(\text{mol s})$  である。

瞬間反応を伴う場合の反応系には酢酸 ( $\text{CH}_3\text{COOH}$  : 物質 A) と水酸化アンモニウム ( $\text{NH}_4\text{OH}$  : 物質 B) (ともに初期濃度  $10\text{ mol/m}^3$ ) の中和反応



を想定した。この場合の反応速度定数は  $k_r \approx 10^8\text{ m}^3/(\text{mol s})$  である。

##### 3.1.1 数値計算手法

計算領域の概略図を図 2 に示す。座標系を主流方向に  $x$ 、鉛直方向に  $y$ 、スパン方向に  $z$  とし、原点 ( $x = y = z = 0$ ) を乱流格子面の中心とした。計算領域を実次元で  $520 \times 80 \times 80\text{ mm}$  の直方体とし、格子点数を  $280 \times 80 \times 80$  とした。乱流格子 (格子間隔  $M = 0.02\text{ m}$ ) は計算領域入口から下流方向に  $0.02\text{m}$  の位置に設置された。

式 (2), (3) および (15) 中に表れる  $\tau_{ij}$ ,  $q_{ij}$ ,  $q_j$  に対しては Dynamic SGS モデルを用いた。また、適度に速い反応の場合に対しては 2.1 節で示した本 SGS 反応モデルを、瞬間反応の場合に対しては 2.2 節で示した本 SGS 反応モデルをそれぞれ用いて化学物質の濃度を求めた。

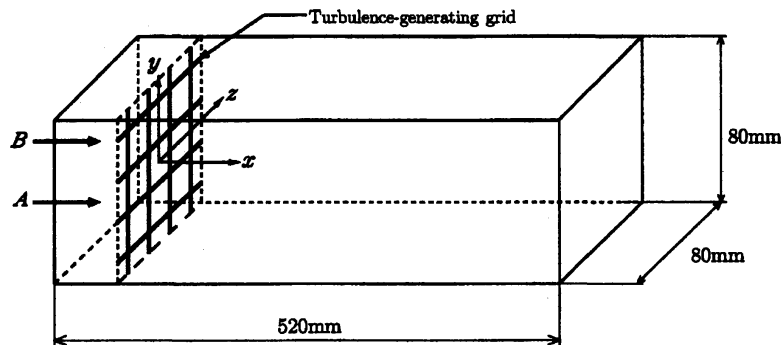


Fig. 2: The computational domain for grid-generated turbulence.

##### 3.1.2 結果と考察

図 3 に生成物質 P の時間平均濃度の主流方向分布を示す。プロットが実験結果を表しており、曲線が LES の結果を表している。ただし、図 3(a) は SGS での混合状態を考慮しないプリミティブ

なモデルを用いた結果であり、図 3(b) は本 SGS 反応モデルを用いた結果である。なお、時間平均化した生成物質 P の濃度  $\langle \Gamma_P \rangle$  は物質 A の初期濃度  $\Gamma_{A0}$  で無次元化されている。図 3(a) では LES の結果は適度に速い反応の場合も瞬間反応の場合も実験値より大きな値となっている。それに対して図 3(b) では LES の結果は実験値とよく一致している。これは、SGS での混合状態を考慮しない、つまり、SGS での濃度むらを見落とすと生成物濃度を過剰に評価してしまうことを表しており、本 SGS 反応モデルを用いて SGS での混合状態を考慮することによって初めて、液相乱流場における適度に速い反応および瞬間反応を正しく予測できることがわかる。

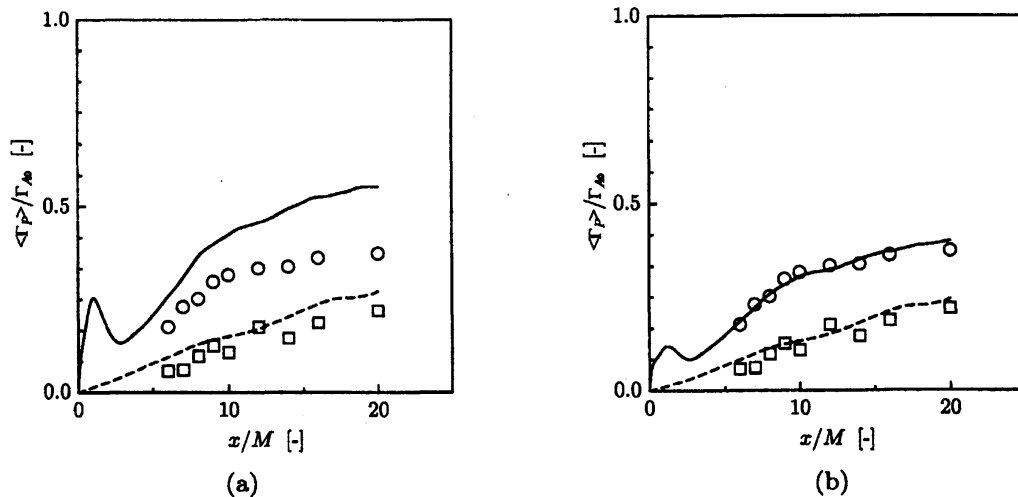


Fig. 3: Streamwise distributions of the mean concentration of species P. Symbols denote the measurements and the lines are the LES predictions by (a) the present SGS model with  $c_f = c'_f = 1.0$  and (b) the present SGS model with  $c_f = c'_f = 5.0$ :  $\circ$ , —, a rapid reaction;  $\square$ , - -, a moderately fast reaction.

### 3.2 安定および不安定温度成層が存在する場合

安定および不安定温度成層が存在する液相混合層に対して LES と室内実験との比較を行った<sup>[7]</sup>。上層の初期流速を 0.165m/s、下層の初期流速を 0.085m/s とし、断面平均流速 0.125m/s、流速差 0.08m/s の混合層を形成させた。安定温度成層が存在する場合は上層を下層よりも 10K 高く設定し、不安定温度成層が存在する場合は逆に上層を下層よりも 10K 低く設定することにより温度成層を形成させた。

反応系としては酢酸 ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ : 物質 A) と水酸化アンモニウム ( $\text{NH}_4\text{OH}$ : 物質 B)(ともに初期濃度 10 mol/m<sup>3</sup>) の中和反応 (瞬間反応) を用いた。

#### 3.2.1 数値計算手法

計算領域の概略図を図 4 に示す。主流方向を  $x$ 、鉛直方向を  $y$ 、スパン方向を  $z$  とし、流入部には長さ 40mm のスプリットプレートを設置した。スプリットプレートによって上下層は完全に分離され、上下層流体が混合を開始するスプリットプレート先端に座標原点をとった。

中立の場合および安定温度成層が存在する場合の計算領域の大きさを 480 × 80 × 80mm とし、格子点数を 360 × 60 × 60 とした。不安定温度成層が存在する場合は中立の場合に比べ混合領域が





$$\delta_u = |y_{u1} - y_{u2}|/0.8 \quad (23)$$

また、濃度混合層厚さを化学反応を伴わない場合の物質 A の時間平均濃度が  $\langle C_A^* \rangle / C_{A0} = 0.1$  となる  $y$  座標を  $y_{c1}$ ,  $\langle C_A^* \rangle / C_{A0} = 0.9$  となる  $y$  座標を  $y_{c2}$  として、次式のように定義した。

$$\delta_c = |y_{c1} - y_{c2}|/0.8 \quad (24)$$

図 5(a) の温度成層が存在しない中立の場合に注目すると  $0.15\text{m} \leq x \leq 0.40\text{m}$  の範囲で LES および実験ともに速度混合層厚さが直線的に増加することがわかる。その直線の傾き  $d\delta_u/dx$  は 0.076 であり、この値は Mehta & Westphal<sup>[4]</sup> によって提案された式に対して本実験での速度比 ( $r = U_i/U_h$ ) を代入することによって得られる値 0.073 と良好に一致する。また、安定および不安定温度成層が存在する場合に関して、SGS への浮力効果を考慮した場合 (式 (22)) と考慮しなかった場合 (式 (21)) の LES の結果に差異は見られず、ともに実験値によく一致している。このことは本 LES が乱流混合に及ぼす温度成層の効果を精度良く予測できることだけでなく、SGS への浮力効果を考慮する必要がないことも示している。よって、以下では式 (21) を用いて計算した場合に関して検討を行う。

化学反応に及ぼす温度成層の効果を本 LES が正しく評価できるかどうかを調べるために、反応生成物濃度を鉛直方向に積分した値 (反応生成物量  $M$ ) を調べた。その主流方向変化を図 6 に示す。なお、縦軸は  $x = 0.20\text{m}$  の断面における反応生成物量 (LES の結果は  $M_{LES}$ , 実験結果は  $M_{EXP}$ ) でそれぞれ割ることによって無次元化された各  $x$  断面での生成物量を示している。図より、本 LES は反応生成物量の増加率や温度成層による変化を正しく予測できることがわかる。

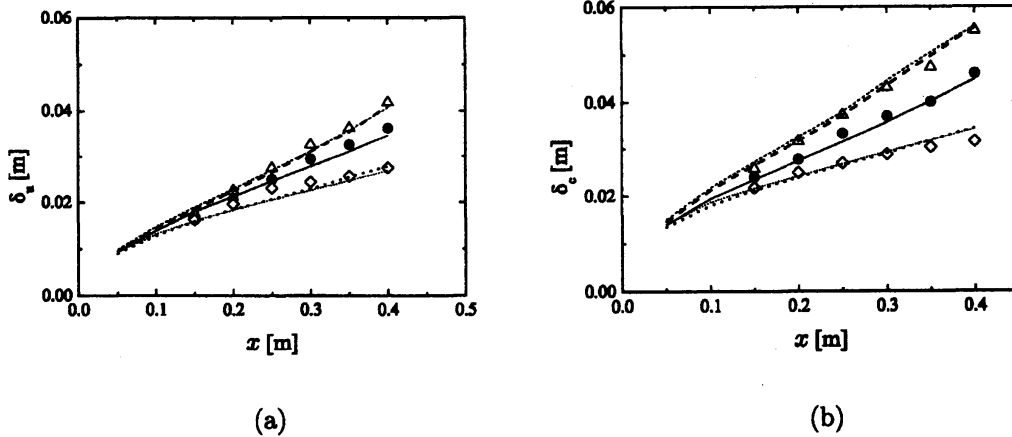


Fig. 5: Streamwise distributions of the mixing layer width (a) in the velocity field and (b) in the concentration field. Symbols denote the measurements, the thick lines are the LES predictions based on the equation (21) and the thin lines are the LES predictions based on the equation (22): ●, —, in neutral stratification; △, ---, ----, in unstable stratification; ◇, ...., ..... in stable stratification.

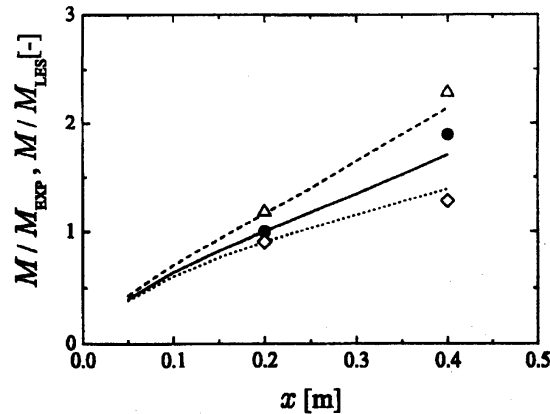


Fig. 6: Streamwise distributions of the amount of chemical product. Symbols as in Fig. 5.

## 4 結言

本研究ではSGSでの混合状態を考慮したSGS反応モデルを提案した。さらにそれを用いたLESを化学反応を伴う種々の乱流場に適用した結果、以下の結果が得られた。

- (1) 本研究で開発したSGS反応モデルを用いたLESは気相のみならず液相乱流場における混合反応現象を定性的にも定量的にも正しく予測できる。
- (2) 本LESは、温度成層した液相乱流場での混合反応現象をも予測できる。なお、SGSの流れ場への浮力効果の影響は非常に小さく、無視できる。

## 参考文献

- [1] COOK, A. W. & RILEY, J. J., 1994, A subgrid model for equilibrium chemistry in turbulent flows. *Phys. Fluids A* **6** (8), 2868.
- [2] GERMANO, M., PIOMELLI, U., MOIN, P. & CABOT, W. H., 1991, A dynamic subgrid-scale eddy viscosity model. *Phys. Fluids A* **3** (7), 1760.
- [3] GIRIMAJI, S. S., 1991, Assumed  $\beta$ -pdf model for turbulent mixing. *Combust. Sci. and Tech.* **78**, 177.
- [4] MEHTA, R. D. & WESTPHAL, R. V., 1986, Near-field turbulence properties of single- and two-stream plane mixing layers. *Exp. Fluids* **4**, 257.
- [5] WONG V. C. & LILLY D. K., 1994, A comparison of two dynamic subgrid closure methods for turbulent thermal convection *Phys. Fluids A* **6** (2), 1016.
- [6] 道岡武信, 長田孝二, 井田敦巳, 小森 悟, 2000, Large eddy simulation of grid-generated turbulence with chemical reactions. 日本機械学会論文集 B 編 **66** (651), 2815.
- [7] 大西 領, 道岡武信, 長田孝二, 小森 悟, 2003, Effects of Thermal Stratifications on Turbulent Mixing and Chemical Reaction in Liquid Mixing Layer. 日本機械学会論文集 B 編 **69**, 636.